

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number : 01-256584

(43) Date of publication of application : 13.10.1989

(51) Int.Cl.

C09K 11/00
C09K 11/06
H05B 33/14

(21) Application number : 63-084000

(71) Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22) Date of filing : 07.04.1988

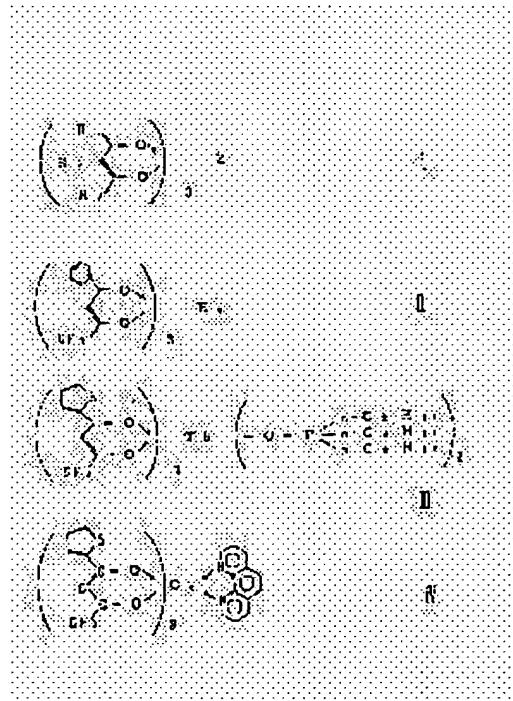
(72) Inventor : HOSOKAWA CHISHIO

(54) THIN-FILM EL ELEMENT

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain the title element which emits light of a vivid color showing high luminance and a sharp spectrum when a low voltage is applied, by using a specified rare earth complex as the luminescent material.

CONSTITUTION: A rare earth complex of formula I [wherein R₁ and R₂ are each 1-15C (halogenated) alkyl, 6-14C aryl, or a five- or six-membered heterocyclic group containing one hetero atom; R₃ is H or R₁; Z is M (rare earth element), MA₂ (wherein A is phosphine oxide) or MB (wherein B is phenanthroline)] (e.g., compounds of formulas II-VI) is used as the luminescent material. For example, this luminescent material is put between two electrodes, and a base plate is provided on the outside of one of the electrodes, thus giving the title element.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than

the examiner's decision of rejection or
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

THIN-FILM EL ELEMENT

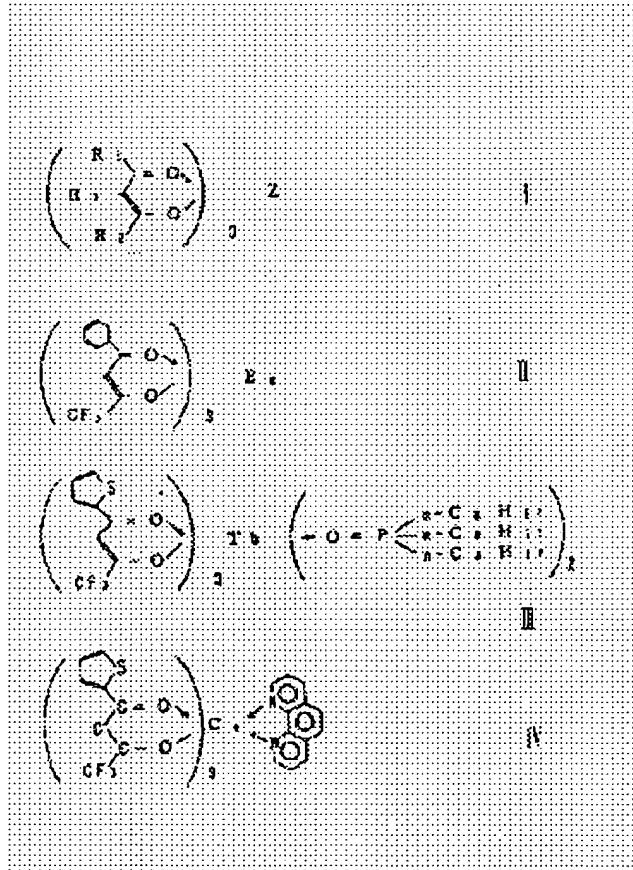
Patent number: JP1256584
Publication date: 1989-10-13
Inventor: HOSOKAWA CHISHIO
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO
Classification:
- international: C09K11/00; C09K11/06; H05B33/14
- european:
Application number: JP19880084000 19880407
Priority number(s): JP19880084000 19880407

[Report a data error here](#)

Abstract of JP1256584

PURPOSE: To obtain the title element which emits light of a vivid color showing high luminance and a sharp spectrum when a low voltage is applied, by using a specified rare earth complex as the luminescent material.

CONSTITUTION: A rare earth complex of formula I [wherein R₁ and R₂ are each 1-15C (halogenated) alkyl, 6-14C aryl, or a five- or six-membered heterocyclic group containing one hetero atom; R₃ is H or R₁; Z is M (rare earth element), MA₂ (wherein A is phosphine oxide) or MB (wherein B is phenanthroline)] (e.g., compounds of formulas II-VI) is used as the luminescent material. For example, this luminescent material is put between two electrodes, and a base plate is provided on the outside of one of the electrodes, thus giving the title element.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報 (A) 平1-256584

⑫ Int. Cl.

C 09 K 11/00
11/06
H 05 B 33/14

職別記号

序内整理番号

F-7215-4H
7215-4H
7254-3K

⑬ 公開 平成1年(1989)10月13日

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全9頁)

⑭ 発明の名称 薄膜E L素子

⑮ 特許番号 昭63-84000

⑯ 出願日 昭63(1988)4月7日

⑰ 発明者 細川 地潮 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内

⑱ 出願人 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

⑲ 代理人 弁理士 渡辺 喜平

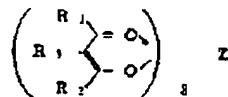
明細書

1. 発明の名前

薄膜E L素子

2. 特許請求の範囲

(1) 式



で表わされる希土類錯体を発光材料として用いたことを特徴とする薄膜E L素子。

上記式中、

R₁およびR₂は、それぞれ独立に炭素数1～15のアルキル基、ハロゲン化した炭素数1～15のアルキル基、皮膚原子6～14個のアーバル基、ヘテロ原子1個を含む5員もしくは8員の複環式基の意味である。

R₃は、水素原子または基R₁と同じ意味である。

Zは、① M (ここでMは、希土類元素の意味である。)

② MA_n (ここでAは、オスマニオウンドであり、Mは上記と同じ意味である。)

③ MB (ここでBは、フェナントロリジンであり、Mは上記と同じ意味である。)

で表わされる部分である。

(2) 発光材料を二枚の電極で挟み、そのうち一方の電極の外側に基板を設けたことを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の薄膜E L素子。

3. 発明の詳細な説明

【装置上の利用分野】

本発明は、低い電圧電圧で、高輝度かつ鮮やかな色彩の発光を薄られる薄膜E L (エレクトロルミネッセンス) 素子に関する。

【従来技術と解決すべき問題点】

E L素子は、自己点光のため視認性が高く、また完全遮光素子であるため耐衝撃性に優れるとい

特開平1-256584 (2)

う特徴を有しており、現在、高輝度発光体である ZnS:M_x を用いた E.L. 素子が広く使用されている。しかしながら、このような無機 E.L. 素子は、発光させるための印加電圧が 200 V 近く必要なため、駆動方法が複雑である。

一方、有機顕微 E.L. 素子は、印加電圧を大幅に低下させることができるために、各種材料を用いたものが開発されつつある。既にヴィンセントらは、アトラセンを発光体とし、膜厚を約 0.6 μm とした導電性樹脂を用いて E.L. 素子を作製し、印加電圧 30 V にて青色の明所可視発光を得ている (Thin Solid Films, 94 (1982) 171)。しかし、この素子体輝度が不十分であり、印加電圧も依然として高くしなければならないという課題がある。

また近年に至っては、10 V 輝度の低電圧を印加するだけで 5 ~ 90 cd/m² の輝度の発光を示す有機 E.L. 素子が、LB 法 (ラングミニア・プロジェクト法) を用いた薄膜にて作製されている (例えば、特開昭 61-43682 号)。しかしながら、この

有機 E.L. 素子は、LB 法による多分子膜の重複によって電子受容性と電子供与性の発光性物質の接觸部を作製するため、相応が複雑であるとともに、製造が煩雑であり、実用性に欠けるという問題がある。

さらに、25 V 以下の低電圧印加で高輝度を発現する有機 E.L. 素子も開発されている (例えば、特開昭 59-194233 号)。この E.L. 素子は、電極 / 正孔注入層 / 発光層 / 電極とした構造型のものであるが、電極間の膜厚が 1 μm 以下であることが必要であり、そのためピンホールが生じやすく、生産性が低いという大きな問題がある。

上述した従来の有機 E.L. 素子は、上記それそれの問題点のほかに、共通の問題点として多発劣化があるという問題があった。すなわち、上述の有機 E.L. 素子は、発光スペクトルの幅が広いため、色の鮮やかさに劣り、單一の青、緑、赤といった色の三原色を表現しにくいという問題点があった。

なお、発光層を二層構造とし、その発光性有機

化合物として希土類錯体等を用い、低電圧でも十分輝度の高い発光を得られる有機 E.L. 素子も開発されている (例えば、特開昭 61-07867 号)。しかしながら、ここに示されている希土類錯体はその一部であり、しかも、これら一類の希土類錯体を発光材料として用いた E.L. 素子の発光する色の豊度、すなわち、色の鮮やかさに関する改善についてはなんら開示がない。

本発明は上記事情に鑑みてなされたもので、低電圧印加により、高輝度かつ鮮いスペクトルを示し鮮明な色を発光する無機 E.L. 素子の提供を目的とする。

【問題点の解決手段】

本発明者は、上記目的を達成するため、錯体研究を経てきた結果、発光材料に、ある種の希土類錯体を用いると、薄膜 E.L. 素子の発光する色の豊度に大きな影響を与えることを知見し本発明を完成するに至った。すなわち、本発明の発明者 E.L. 素子は、式



で表わされる希土類錯体を発光材料として用いた構成としてある。

なお、上記式中、

R₁ : および R₂ は、それぞれ独立に炭素数 1 ~ 15 のアルキル基、ハロゲン化した炭素数 1 ~ 15 のアルキル基、炭素原子 6 ~ 14 個のアリール基、ヘテロ原子 1 個を含む且もしくは 2 個の複素環式基の意味である。

R₃ は、水素原子または基 R₁ と同じ意味である。

・では、① M (ここで M は、希土類元素の意味である。)

② MA_n (ここで A は、ホスフィンオキシドであり、M は上記と同じ意味である。)

③ MB (ここで B は、フェナントリエンであり、M は上記と同じ意味である。)

特開平1-256584(3)

る。)

で表わされる部分である。

本発明の特徴E1電子子は、上記発光材料を二枚の電極で挟み、そのうち一方の電極の外側に基板を設けた構成とすることが好ましい。

以下、本発明の解決手段を詳細に説明する。

本発明の特徴E1電子子は、A-C(交換)型動型およびD-C(直通)型動型のいずれにも用いることができるが、以下の説明は第1図を参照しつつD-C型について行なう。

第1図において、1は基板であり、ガラス、プラスチックあるいは石英等によって形成してある。2および3は発光層4を挟む電極であり、このうち、一方の電極2は基板1上に形成され、ITO(インジウムチタンオキサイド)、SnO₂(酸化錫二端)、ZnO(酸化亜鉛)等により透明もしくは半透明の電極としてある。この電極2は、通常60nm~1μmの膜厚とし、透明性の点からすると、50~150nmとすることが好ましい。また、他方の電極3は背面(対向)電極とも

基、エチル基、プロピル基、ブチル基、1-ブロピル基、1-ブチル基、1-ブチル基、3-ブチル基、オクチル基あるいはノニル基等である。

ハロゲン化した炭素数1~15のアルキル基(ここでハロゲンとは、塩素、フッ素、臭素等である。)、例えば、トリフルオロメチル基、ペブタフルオロブチル基、トリクロロメチル基、トリブロモメチル基、ジクロロメチル基、クロロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、ジブロモメチル基あるいは、ブロモメチル基等である。

炭素原子8~14個のアリール基、例えば、フェニル基、ナフチル基、トリル基、キシリル基あるいは、アントリル基等である。

ヘテロ原子、例えば窒素、隣接もしくは複数1個を含む5員もしくは8員の複環環式基、例えば、ビロリル基、フリル基、チニニル基あるいは、ビリジル基等である。

R₁は水素または基R₁と同一意味である。

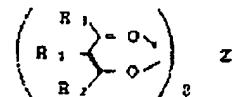
で表わしており、金、アルミニウム、マグネシウム、インジウム等の金属を見いている。この背面電極3は、通常50~200nmの膜厚とする。

なお、背面E1電子子のタイプによっては、背面1側の電極2を金属の背面電極とし、他の電極3を透明もしくは半透明の電極とすることも可能である。

発光層4は、ある種希土類錯体からなる発光材料により、100nm~5μmの膜厚に形成している。

この発光材料の希土類錯体としては、

式



で表わされるものを用いる。

このうち、R₁およびR₂は、それぞれ独立に、

炭素数1~15のアルキル基、例えば、メチル

さらに、部分Zは、

第一に、Mとして表わされ、

ここでMは、希土類元素であり、Ce(セリウム)、Tb(テルビウム)、Eu(サマリウム)、Er(エウロビウム)、Ho(ホルミウム)、Pr(プラセオジム)、Gd(ガドリウム)、Bt(エルビウム)、Tm(ツリウム)等がある。

本例における希土類錯体としては、例えば、B₂O₃とBPA(ベンジイルトリフルオロアセトン)からなる[B₂O₃(BPA)₃]を挙げられる。

これを構造式で示すと、



として表わされる。

第二に、MA₃で表わされ、

ここでAはオスフィンオキシド、例えば、トリアルキルオスフィンオキシドであり、そのアルキル部分には炭素原子8~12個を含むもの、例え

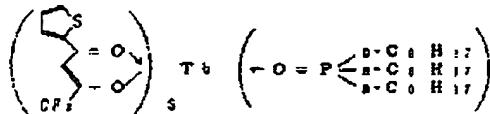
特開平1-256584 (4)

び、ヨー-オクチル基(炭素8個)を含むことがである。

Mは、上記Mと同じ意味である。

本例における希土類錯体としては、例えば、
TbとTTA(テノイルトリフルオロアセトン)
とTOP(O(トリ-エーオクチルホスフィンオキ
シド)からなる[Tb(TTA)(TOP)]を
挙げられる。

これを構造式で示すと、



として表わされる。

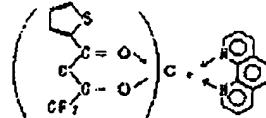
第三に、MBとして表わされ、

ここでBは、フェナントロリンであり、Mは上
記Mと同じ意味である。

本例における希土類錯体としては、Bと
TTAとPhen(フェナントロリン)からなる
[B(TTA)(Phen)]、S_nとNTFA

(2-ナフтиルトリフルオロアセトン)とPhen
からなる[S_n(NTFA)(Phen)]およびC_nと
TTAとPhenからなる[C_n(TTA)(Phen)]等
を挙げられる。

[C_n(TTA)(Phen)]を構造式で示すと、

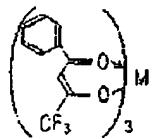


として表わされる。

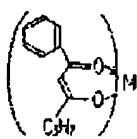
上記希土類を具体的に例示すれば、次の(1 -
(6-6))で表わすことができる。

【以下省略】

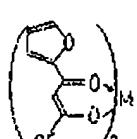
(1-1)BFA



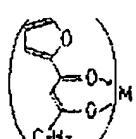
(1-4)



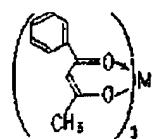
(2-1)



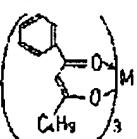
(2-4)



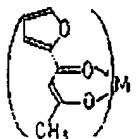
(1-2)



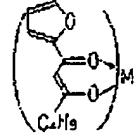
(1-5)



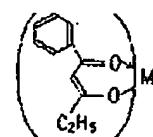
(2-2)



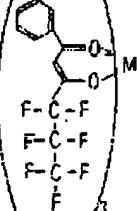
(2-5)



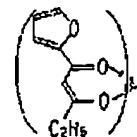
(1-3)



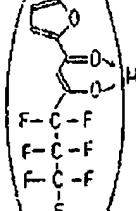
(1-6)



(2-3)

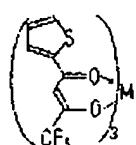


(2-6)

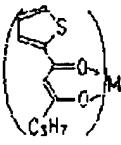


特開平1-256584 (5)

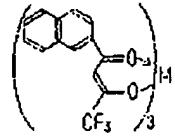
(3-1) TTA



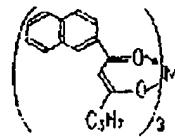
(3-4)



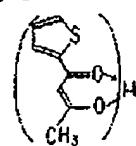
(4-1) NTFA



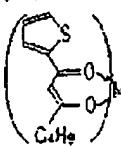
(4-4)



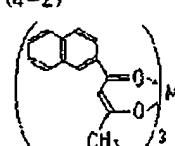
(3-2)



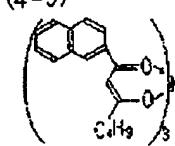
(3-5)



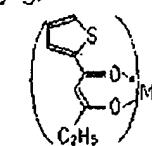
(4-2)



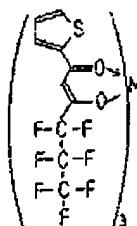
(4-5)



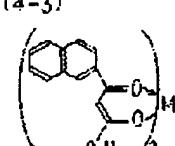
(3-3)



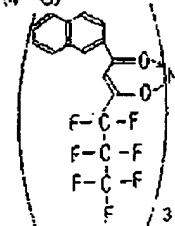
(3-6)



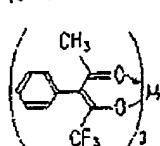
(4-3)



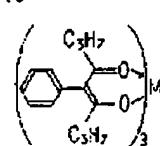
(4-6)



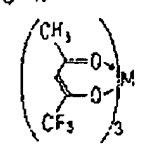
(5-1)



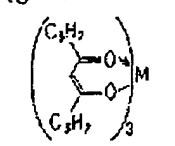
(5-4)



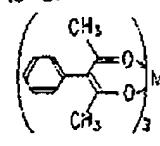
(6-1)



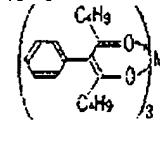
(6-4)



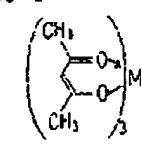
(5-2)



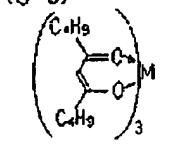
(5-5)



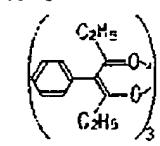
(6-2)



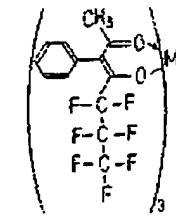
(6-5)



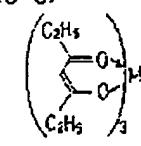
(5-3)



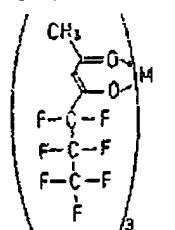
(5-6)



(6-3)



(6-6)



特開平1-256584 (6)

ここで、Mは希土類元素を含むし、上記(1-1)～(6-6)には、1,10-フェナントロリン、トリオクチルホスファミンオキシドを付加することもできる。

上記のような構成からなる発光素子は、次のような手順で作成する。

まず、基板1上に透明電極2を蒸着法あるいはスパッタ法などで膜層形成する。次いで、この透明電極2の上面に発光材料を薄膜化してなる発光層4を形成する。このときの薄膜化は、スピンドル法、キャスト法、LB法あるいは蒸着法などにより行ない、膜の均一性およびピンホールの除去等の点からすると、次の蒸着条件により蒸着を行なうことが好ましい。

(蒸着条件)

ポート加熱条件：50～300°C

真空度：10⁻⁵～10⁻²Pa

蒸着速度：0.1～50 nm/sec

基板温度：-60～200°C

膜厚：100 nm～5 nm

その後、発光層4の上面に、背面電極3を蒸着法あるいはスパッタ法などで膜層形成する。

【実施例】

実施例1

25 mm×75 mm×1.2 mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて50 nmの厚さに膜層したものを透明支持基板とし、この支持基板を真空蒸着装置（日本真空技術株式会社製）の基板ホルダーに固定し、モリブデン型の抵抗加熱ポートに【E_x(BFA)】₁ 箔体を200 nm入れ真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。ここで、【E_x(BFA)】₁は、P径4.5のE_x、耐熱塗料水溶液にBFAのシクロヘキサン溶液を加えることによって合成する。【E_x(BFA)】₁は、水溶液中よりシクロヘキサン溶液中に移行する性質を有するので、これにより抽出することができる。抽出後、溶液を減圧下除臭し【E_x(BFA)】₁を得、これを精製した。

また、前記ポートを110°Cまで加熱し、蒸着速度1.0 nm/secで膜厚1.6 nmの発光分

薄膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。

次いで、これを真空槽より取り出し、発光体母版上にステンレススチール製のマスクを設置し、及び基板ホルダーに固定し、モリブデン型の抵抗加熱ポートに金20 nmを入れて真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。その後、ポートを140°Cまで加熱し、100 nmの膜層で金電極を摩耗面上に形成し対向電極とした。

この電子子に直流電圧30Vを、金電極を正極とし、ITO電極を負極として印加したところ、電流が10 mA流れ、赤色発光を得た。このときの発光極大波長は616 nm、発光輝度は8.0 cd/m²であった。CIE色度座標はx=0.65、y=0.34であり、鮮明な赤色であった。

実施例2

実施例1と同様の加熱ポートに、【T_x(TTA)】₂(TOPO)、箔体を200 nm入れ真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。ここで【T_x(TTA)】₂(TOPO)は、堿化Tiの水溶液を

PH4.5に調整し、これに2×10⁻⁴ molのTOPO、6×10⁻⁴ molのTTAのヘキサン溶液を加えて混合し、その後抽出を行なった。さらに、溶液を減圧下除臭し、【T_x(TTA)】₂(TOPO)を得、これを精製した。

また、前記ポートを140°Cまで加熱し、蒸着速度1.0 nm/secで膜厚1.6 nmの発光体母版を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例1と同様に金対向電極を形成し電子子とした。

この電子子に直列電圧20Vを印加したところ、電流が1.5 mA流れ、黄緑色発光を得た。このときの発光極大波長は545 nm、発光輝度は7.6 cd/m²であった。CIE色度座標はx=0.34、y=0.56であり、鮮明な黄緑色であった。

実施例3

実施例1と同様の加熱ポートに、【E_x(TTA)】₃(Phen) 箔体を200 nm入れ真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。ここで【E_x(TTA)】₃

特開平1-256584(7)

(Phen)] は、均化 E_v の水溶液を PH 5.5 に調製し、これに Phen をアセトンとベンゼンの 1 : 1 混合溶液に溶かしたものと混合して抽出を行なった。さらに、溶媒を減圧下除去し [E_v(TTA), (Phen)] を得、これを精製した。

また、前記ポートを 140°C まで加熱し、遮蔽速度 1.0 nm/sec で [B_v(TTA), (Phen)] 粒体を透明支持基板上に蒸着し膜厚約 1.2 μm の発光体膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例 1 と同様に全対向電極を形成し電子とした。

この電子に直流通電圧 30 V を印加したところ、電流が 2.4 mA 流れ、赤色発光を得た。このときの発光極大波長は 618 nm、発光輝度は 280 cd/m² であった。CIE 色度座標は x = 0.65, y = 0.34 であり、鮮明な赤色であった。

実施例 4

実施例 1 と同様の加熱ポートに、[S_v(NTFA), (Phen)] 粒体を 200 ns 入れ真空槽を 1 ×

10⁻⁴Pa まで減圧した。ここで [S_v(NTFA), (Phen)] は、均化 S_v の水溶液を PH 5.5 に調製し、これに Phen をシクロヘキサン溶液を混合して抽出を行なった。さらに、溶媒を減圧下除去し [S_v(NTFA), (Phen)] を得、これを精製した。

また、前記ポートを 160°C まで加熱し、遮蔽速度 1.0 nm/sec で膜厚 1.1 μm の発光体膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例 1 と同様に全対向電極を形成し電子とした。

この電子に直流通電圧 40 V を印加したところ、電流が 3.7 mA 流れ、赤色発光を得た。このときの発光極大波長は 654 nm、発光輝度は 170 cd/m² であった。この結果、CIE 色度座標は x = 0.66, y = 0.32 であり、鮮明な赤色であった。

実施例 5

実施例 1 と同様の加熱ポートに、[C_v(TTA), (Phen)] 粒体を 200 ns 入れ真空槽を 1 ×

10⁻⁴Pa まで減圧した。ここで [C_v(TTA), (Phen)] は、均化 C_v の水溶液を PH 4.5 に調製し、これに Phen をアセトンとベンゼンの 1 : 1 混合溶液に溶かしたものと混合して抽出を行なった。さらに、溶媒を減圧下除去し [C_v(TTA), (Phen)] を得、これを精製した。

また、前記ポートを 145°C まで加熱し、遮蔽速度 1.0 nm/sec で膜厚 1.3 μm の発光体膜を得た。このときの基板温度は、室温であった。次いで、実施例 1 と同様に全対向電極を形成し電子とした。

この電子に直流通電圧 50 V を印加したところ、電流が 5.8 mA 流れ、青紫色発光を得た。このときの発光極大波長は 400 nm、発光輝度は 89 cd/m² であった。CIE 色度座標は x = 0.17, y = 0.02 であり、鮮明な青紫色であった。

上記の結果、本発明の導焼 E_v 電子によれば、低電圧を印加するだけで赤、青、紫の三原色を、高輝度かつ鋭いスペクトルで最もよく発光するこ

とが判明した。これにより各色の色を鮮明に認めず薄焼 E_v 電子からなるカラーディスプレイ等を実現できることが可能になった。また、薄焼 E_v 電子の製造も容易であり、生産性の向上を図ることを判明した。

【発明の効果】

以上のように水発明の構成を E_v 電子によれば、低電圧を印加するだけで、高輝度で鮮明な色を発光できる効果を有する。

4. 図面の簡単な説明

第 1 図は本発明構成を示す概略構成図である。

- | | |
|--------|--------|
| 1：基板 | 2：透明電極 |
| 3：背面電極 | 4：発光層 |

出願人 出光興産株式会社

代理人 力士 勝利 喜平

特開平1-256584(8)

手続補正書

昭和63年 4月16日

特許庁長官 小川 邦夫 殿

1. 事件の表示 63-04002

昭和63年 4月 7日付特許出願

2. 発明の名稱

専用電極素子

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住 所 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号

名 称 出光興産株式会社

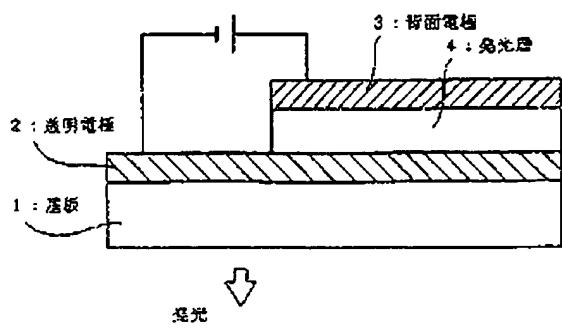
4. 代理人 電話 378-3878

住 所 東京都港区新橋五丁目21番 1号
東京第三ビル

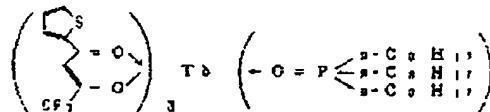
氏 名 (8675) 分厚士 渡辺喜平

5. 補正命令の日付 昭和63年4月16日

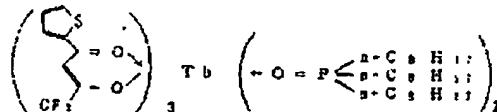
6. 補正の効果 明細書



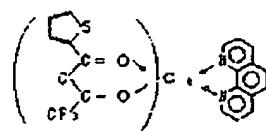
7. 補正の内容

(1) 図面書 第11頁 第10行の
「構造式」

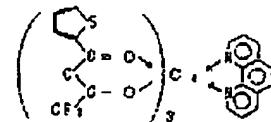
等、



のように訂正する。

(2) 同 第12頁 第8行の
「構造式」

等、



のように訂正する。

(3) 同 第13頁～第15頁を、別紙のとおり
全文訂正する。

(4) 同 第22頁第1行

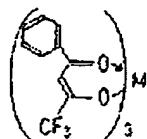
「 2×10^{-4} mol」を、「 2×10^{-4} mol/2」に訂正する。

(5) 同 第22頁 第2行

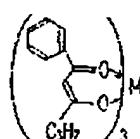
「 5×10^{-4} mol」を、「 5×10^{-4} mol/2」に訂正する。

以上

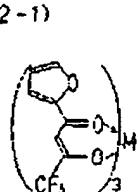
特許平1-256584 (S)

(1-1) [M(BFA)₅]

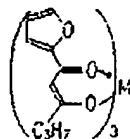
(1-4)



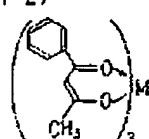
(2-3)



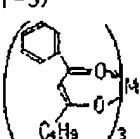
(2-4)



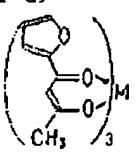
(1-2)



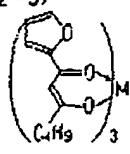
(1-5)



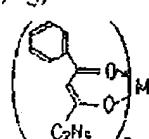
(2-2)



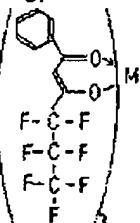
(2-5)



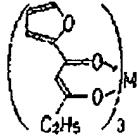
(1-3)



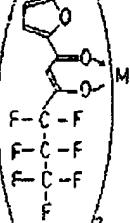
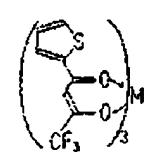
(1-6)



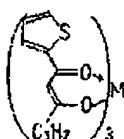
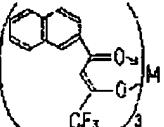
(2-3)



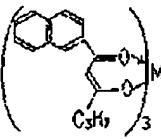
(2-6)

(3-1) [M(TTA)₅]

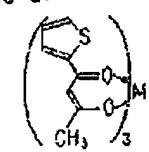
(3-4)

(4-1) [M(NTFA)₅]

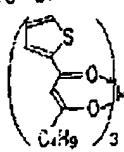
(4-4)



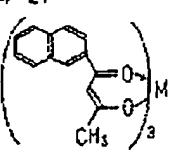
(3-2)



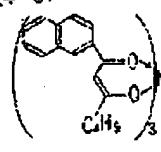
(3-5)



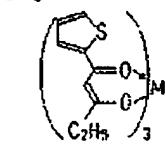
(4-2)



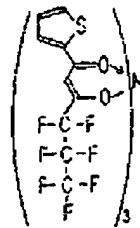
(4-5)



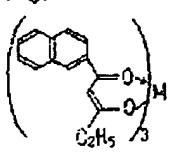
(3-3)



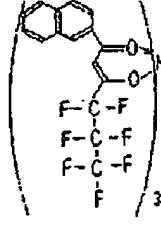
(3-6)



(4-3)



(4-6)



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.